2.3.5 Diskussion des Modells unabhängiger Bosonen

„independent Boson model": beschreibt die Wechselwirkung eines Zweiniveausystems mit einem Satz voneinander unabhängiger Bosonen (Phononen)

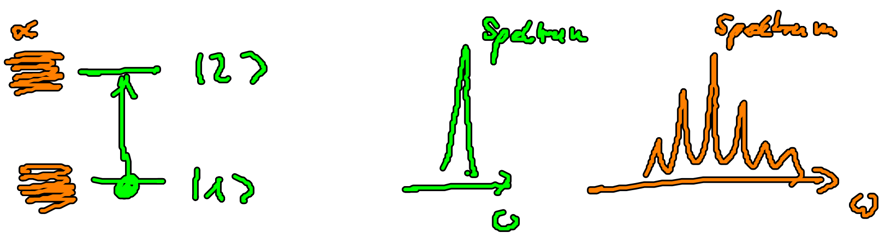
$$P(t) = P_0 \, e^{i\omega_{12} t} \, \exp\left(i \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha} t - \phi(t)\right)$$

Dipol des 2-Niveausystems

Anfangswert

freie Oszillation

Modifikation durch Phononen



(Modifikation d. Phononen)

mit kohärenter Überlagerung ~ P-Dipolschwingg. absorbiert Licht

Frage: wie sieht Spektrum aus?

$$\phi(t) = \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha^2} \left\{ (1+n_\alpha)\left(1-e^{-i\omega_\alpha t}\right) + n_\alpha \left(1-e^{i\omega_\alpha t}\right) \right\}$$

Bemerkg.:

a) Energieverschiebung des „nackten" elektronischen Übergangs

$$\omega_{12} \rightarrow \tilde{\omega}_{12} = \omega_{12} + \sum_{\alpha} \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha}$$

„Polaron shift" Polaron: elektronische Anregg. + Phononwolke

b) durch $\phi(t)$ wird es eine Modifikation der harmonischen Schwingg. geben:

sieht man schon bei 1 Phononmode: $\alpha = 0$

$$P(t) = P_0\, e^{i\tilde{\omega}_{12} t} \left(e^{-\frac{g_0^2}{\omega_0^2}(1+2n_0)} \sum_{l,m} \frac{(1+n_0)^m}{m!}\, e^{-im\omega_0 t}\, \frac{n_0^l}{l!}\, e^{il\omega_0 t} \right)$$

Es treten Mehrphononprozesse auf ($l, m = 0, 1, 2 \ldots$)

in der umgebenden Phononwolke.

→ Herausbildg. einer Quasianregung:

Umgebung + nackte Anregung

c) es tritt Phononemission $\sim (1+n_0)^m$

und Phononabsorption $\sim n_0^l$ auf $\alpha = 0$

$$n_\alpha = \frac{}{e^{\beta\hbar\omega_\alpha}-1}$$

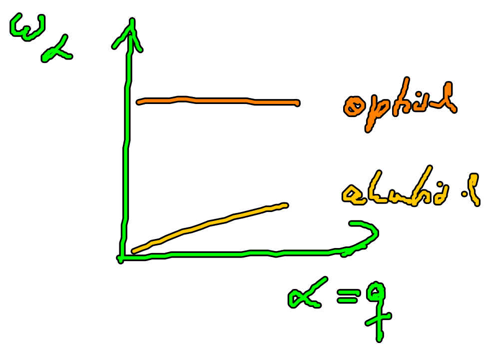
Hochtemperaturfall $T \to \infty$

$$\approx \frac{1}{1+\beta\hbar\omega_\alpha - 1} = \frac{kT}{\hbar\omega_\alpha}$$

Tieftemperaturfall $T \to 0$

$$\approx e^{-\beta\hbar\omega_\alpha} \to 0$$

Konkretes Verhalten ist extrem abhängig v. Phononstruktur:



optisch $\to$ $\omega_q \approx$ konstant

akustisch $\to$ $\omega_q = \beta \cdot q$

diskutieren 2 Modelle:

- ein Phonon mode feste Energie
- viele Phonon moden verschiedene Energie

2.4. Zwei Modellfälle der diagonalen El-Ph Kopplung

2.4.1. Eine feste Mode $\quad \alpha = 0$

(optische Mode z.B.)

$$P(t) = P_0\, e^{i\tilde{\omega}_{12} t}\, e^{-\phi(t)}$$

$$\phi(t) = \frac{g^2}{\omega_0^2}\left\{(1+n_0)\left(1-e^{-i\omega_0 t}\right) + n_0\left(1-e^{i\omega_0 t}\right)\right\}$$

$$n_0 = 1/\left(e^{\beta\hbar\omega_0}-1\right) \longrightarrow \frac{n_0+1}{n_0} = e^{\beta\hbar\omega_0}, \quad \left(\frac{n_0+1}{n_0}\right)^{1/2} = e^{\frac{\beta\hbar\omega_0}{2}}$$

$$\phi(t) = \frac{g^2}{\omega^2}\left((2n_0+1) - \left(n_0(n_0+1)\right)^{1/2}\left(e^{-i\omega_0(t+i\hbar\beta/2)} + e^{i\omega_0(t+i\hbar\beta/2)}\right)\right)$$

aus
$$\underbrace{e^{z\cos\vartheta} = \sum_{l=-\infty}^{+\infty} I_{|l|}(z)\, e^{il\vartheta}}$$

Entwicklung nach Besselfunktion $I_l(z)$ mit

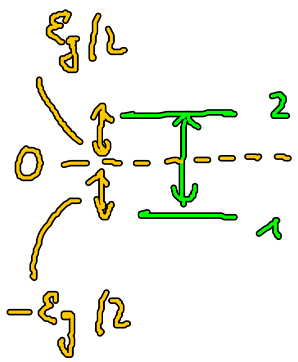
$$z = 2\frac{g^2}{\omega_0^2}\left(n_0(n_0+1)\right)^{1/2}, \quad \vartheta = \omega_0\left(t + i\frac{\hbar\beta}{2}\right)$$

$$P(t) = P_0\, e^{i\tilde{\omega}_{12} t}\, e^{-\frac{g^2}{\omega_0^2}(2n_0+1)} \sum_{l=-\infty}^{+\infty}\left(I_{|l|}\left(\frac{2g^2}{\omega_0^2}\left[n_0(n_0+1)\right]^{1/2}\right) e^{il\omega_0 t}\, e^{-l\frac{\hbar\beta}{2}\omega_0}\right)$$

wenn man jetzt Absorptionsspektrum ansieht,

also die Spektralzerlegung (Fouriertransformation) der Dipoldichte

$$P(\omega) = \sum_{l} \alpha_l \, \delta\left(\omega - |\tilde{\omega}_{12}| + l\omega_0\right)$$

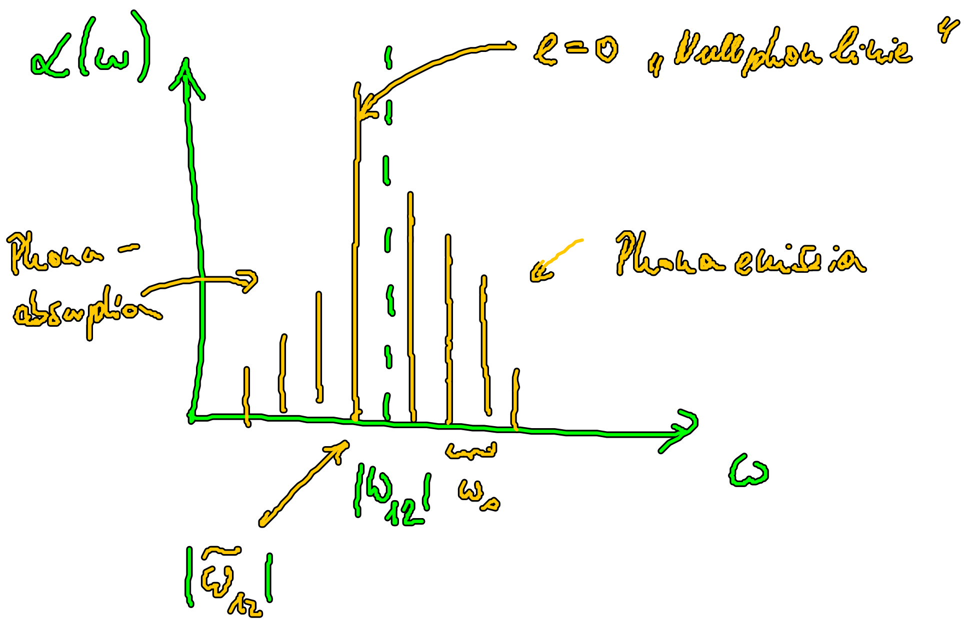


$$\omega_{12} = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\hbar}$$

$$= \frac{-\varepsilon_g}{2} - \frac{\varepsilon_g}{2} = -\varepsilon_g < 0$$

Die Absorption besteht aus einer Summe von δ-Linien die um jeweils $\Delta\omega = \omega_0$ verschoben sind.

ω ist als absorbierte Lichtfrequenz zu interpretieren.



Bemerkg.: a) Nulllinie ist um Polaronshift verschoben

b) $\exists$ Ungenauigkeit um die Nullphonon Linie:

$l > 0$ also $\omega < |\tilde{\omega}_{12}|$

$|\tilde{\omega}_{12}|$

$\omega \hat{=}$ Licht das z.V. gestellt wird

$\omega_0 \hat{=}$ 1 Photon wird von Umgebg. z.V. gestellt

gilt f. n-Photonprozesse

je größer n, desto unwahrscheinlicher

$\longrightarrow$ Linie wird kleiner

$l < 0$ also $\omega > |\tilde{\omega}_{12}|$

$|\tilde{\omega}_{12}|$

$\hat{=} \omega$

$\hat{=} \omega_0$

1 Photon kann an Umgebung abgegeben werden

(n Phot. – analog)

c) mathematische Struktur der Besselfunktion:

$$I_{|l|}(x) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k}{k!\,(|l|+k)!} \left(\frac{x}{2}\right)^{|l|+2k}$$

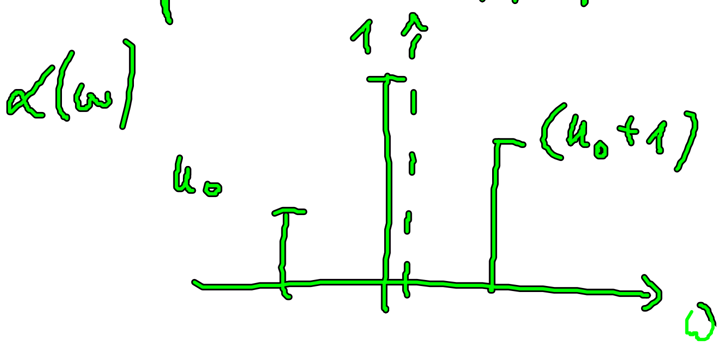
$$\alpha_0 = P_0 \left(1 - \frac{g^2}{\omega^2}(1+2n_0)\right)$$

$$\alpha_1 = P_0 \frac{g^2}{\omega_0^2} n_0$$

$$\alpha_{-1} = P_0 \frac{g^2}{\omega_0^2} (n_0 + 1)$$

Sind die Koeffizient für $x \hat{=} g^2 \to 0$

für klein Kopplungsstärke: (1. Ordn. Taylor, $\alpha = 0, \pm 1$)



→ siehe ÜA.

2.4.2. Viele dichte Phononmoden

Summe über α ernst nehmen ($\alpha \hat{=}$ Modenindex)

$\sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha^2} \dots$ ist gesucht $= \int d\omega \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha^2} \delta(\omega - \omega_\alpha)$

möchte integrieren,
ist einfacher +
Moden sollen dicht liegen

$$= \int d\omega \, J(\omega), \quad J(\omega) = \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha^2} \delta(\omega - \omega_\alpha)$$

f. $J(\omega)$ wird Modelle eingesetzt,

ω liegen dicht, J heißt Spektraldichte der El-Ph-WW

<u>Beispiel</u>: $\omega J(\omega) = \Theta(\omega) \dfrac{\alpha_0^2}{\omega^2 + \omega_D^2}$

- dichtes Spektrum:
- $\omega \geq 0$, sichergestellt d. Θ-Funktion
- $J(\omega) \to 0$, $\omega \to \infty$
- die Debye-frequenz ω_D ist ein typischer Abschneideparameter
- α_0^2 : Stärke der WW

sehe jetzt wieder Modell $P(t) = P_0 e^{i\tilde{\omega}_{12} t} e^{-\phi(t)}$ an:

man kann Dämpfung der Dipoldichte erwarten,
weil Moden sehr dicht liegen $\to$ destruktive Interferenz

a) <u>Polaronshift Δ</u>

$$\Delta = \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha} = \sum_\alpha \int d\omega \, \delta(\omega - \omega_\alpha) \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha} =$$

$$= \int_0^\infty d\omega\, \omega\, J(\omega) = \int_0^\infty d\omega \frac{\alpha_0^2}{\omega^2+\omega_D^2} = \frac{\alpha_0^2}{\omega_D}\,\frac{\pi}{2}$$

Bedtg. als Fkt. d. Modellparameter

b) Zeitlich Dämpfg. d. Dipoldichte

sehen uns dabei den Realteil von $\phi(t)$ an

$$\mathrm{Re}\,\phi(t) = \sum_\alpha \frac{g_\alpha^2}{\omega_\alpha^2} \underbrace{(1+2n_\alpha)}_{\frac{2kT}{\hbar\omega_\alpha} \text{ f. } T\to\infty} \left(1-\cos(\omega_\alpha t)\right)$$

$$= \int_0^\infty d\omega\, \frac{2kT}{\hbar\omega}\left(1-\cos(\omega t)\right) J(\omega)$$

$$\mathrm{Re}\left(\phi(t)\right) = \int_0^\infty d\omega\, \frac{2kT\alpha_0^2}{\hbar}\frac{1}{\omega^2}\left(1-\cos(\omega t)\right)\frac{1}{(\omega^2+\omega_D^2)}$$

kann nachgeschlagen oder berechnet werden:

$$= \frac{\pi k T}{\hbar} \frac{\alpha_0^2}{\omega_D^3} \left(e^{-\omega_D t} + \omega_D t - 1\right)$$

$$\boxed{P(t) \simeq e^{-\gamma \left(e^{-\omega_D t} + \omega_D t - 1\right)} \quad \text{ist Dämpfungsanteil der Dipolschwingung} \qquad \gamma = \frac{\pi k T \alpha_0^2}{\hbar \omega_D^3}}$$

<u>Bemerkungen z. Dämpfung:</u>

a) Kurzzeitverhalten: $\omega_D t \ll 1$

$\rightarrow$ „sehe auf Zeitskala auf System in dem sich die Phononoszillation noch nicht richtig ausgebildet haben"

$$e^{-\omega_D t} + \omega_D t - 1 \approx \left(1 - \omega_D t + \frac{1}{2}(\omega_D t)^2 + \omega_D t - 1\right)$$

$$= \frac{1}{2}(\omega_D t)^2$$

$$\rightarrow P(t) \sim e^{-\frac{\gamma}{2}(\omega_D t)^2}$$

gibt ein quadratisches Zerfallsgesetz und damit wäre eine Absorptionslinie <u>gaußförmig</u>.

b) Langzeitverhalten: $\omega_D t \gg 1$

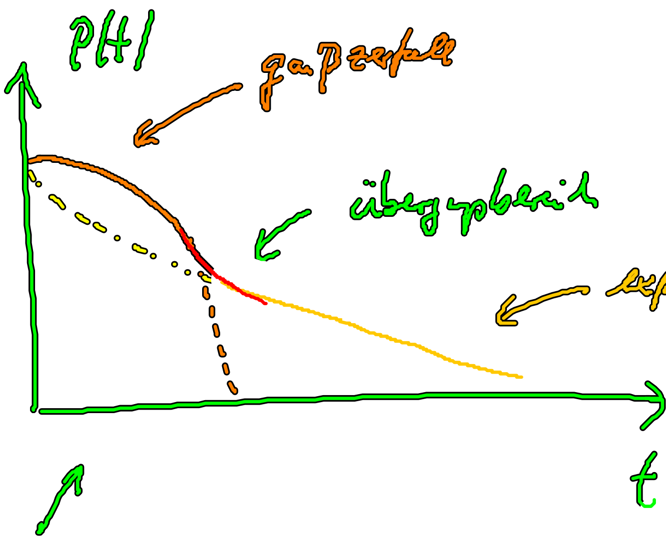
→ „sehe nur auf Zeitskala auf der sich die Phonon oszillation voll ausgebildet haben"

$$e^{-\omega_D t} + \omega_D t - 1 \approx \omega_D t$$

→ $P(t) \approx e^{-\gamma(\omega_D t)}$

man erhält einen exponentiellen Zerfall für lange Zeiten

das Absorptionsspektrum ist Lorentzförmig



nicht markoff Verhalten

≙ „gedächtnis"

„Phonon find erstmal in Ruhe ihre Frequenzen"

c) Interpretation: Die Trennung der Zeitskala durch $\frac{1}{\omega_D}$

findet bei der Zeit statt, wo sich die Phononen
„im klaren sind" mit welcher Frequenz sie schwingen müssen

für kleine Zeiten sind Phononen eingefroren
→ Gaußartiges Absorptionsspektrum } tiefe T

f. große Zeiten sind bewegl. Phononen
→ Lorentzartiges Absorptionsspektrum } hohe T

→ qualitative, Hausnummerartige Diskussion

allg. Spektrum